

MgB₂ süperiletken külçe malzemesine altın kaplamasının etkileri

Asaf Tolga ULGEN^{1,2*}

¹Şırnak Üniversitesi Mühendislik Fakültesi, Elektrik Elektronik Mühendisliği, Şırnak.

²Ankara Üniversitesi Süperiletken Teknolojileri Uygulama ve Araştırma Merkezi, Ankara.

Geliş Tarihi (Recived Date): 21.08.2017

Kabul Tarihi (Accepted Date): 02.12.2017

Özet

Magnezyum diborür (MgB₂) süperiletken külçe malzemeleri argon atmosferinde ex-situ (hazır toz) ve in-situ (Mg+2B) katıhal reaksiyon yöntemiyle hazırlanmıştır. Ex-situ/in-situ MgB₂ süperiletken örneklerin bir yüzeyine ~50 µm altın (Au) kalın film kaplaması yapılmıştır. Bir yüzeyi Au kaplı ex-situ/in-situ MgB₂ süperiletken örnekler 650°C–850°C sıcaklık aralığının da 1 saat tavlama yapılmıştır. Bu malzemelerin X-Işını Kırınım (XRD) yöntemi kullanılarak mikro yapısal değişimi ve direnç-sıcaklık ölçümleri (R-T) ile elektriksel karakteristiği incelenmiştir. Au kaplamasıyla MgB₂ malzemesinin c örgü parametresi ve özkütlesinin arttığı gözlemlenmiş, aynı zamanda bazı tavlama sıcaklığında kritik geçiş sıcaklığı (T_c) iyileşme göstermiştir.

Anahtar kelimeler: Ex-situ/In-situ MgB₂ süperiletken külçe malzeme, Au kaplama.

Effects of gold coated on MgB₂ superconducting bulk samples

Abstract

Magnesium diboride (MgB₂) superconducting bulk materials were prepared by the ex-situ (commercial powder) and in-situ (Mg + 2B) solid state reaction method in argon atmosphere. One surface of the ex-situ / in-situ MgB₂ superconducting samples was coated ~50 µm gold (Au) thick film. Au-coated surface of ex-situ / in-situ MgB₂ superconducting samples was annealed at temperature range from 650°C to 850°C for 1 hour. The microstructural properties and electrical characteristics of these materials were investigated by X-Ray Diffraction (XRD) method and resistance-temperature measurements (R-T), respectively. It has been found that the lattice parameter c and density of MgB₂ material were increased by coating Au, also the critical transition temperature (T_c) was improved at some annealing temperatures.

Keywords: Ex-situ/In-situ MgB₂ superconducting bulk sample, Au coating.

* Asaf Tolga ULGEN, ulgen_at@sirnak.edu.tr, <http://orcid.org/0000-0003-1776-5651>

1. Giriş

Süperiletkenlik, 1911 yılında H. K. Onnes [1] tarafından deneysel olarak ortaya çıkarılmış ve ilk çalışmalar saf metallerin direnç ölçümleriyle başlamıştır. Süperiletkenliğin keşfinden günümüze kadar birçok metal ve alaşımlar detaylıca incelenmiş, çoğunun düşük sıcaklıklarda ($T < 20$ K) süperiletkenlik özelliğe sahip olduğu gözlenmiştir. 1954 yılından beri bilinen ve eski bir bileşik olan magnezyum diborür (MgB_2) metal alaşımının [2] 39 K'de süperiletken olduğu ilk kez Akimitsu ve çalışma grubu tarafından 2001 Ocak ayında Japonya'da düzenlenen bilimsel toplantıda rapor edilmiştir [3]. MgB_2 'yi diğer süperiletken malzemelere kıyasla önemli kılan özellikleri; basit hegzagonal kristal yapısı, sadece magnezyum (Mg) ve bor (B) elementten oluşan intermetalik bir bileşik olması, teknolojik uygulamalarda iyi sayılabilecek yüksek kritik sıcaklık değeri (T_c) ve ikinci tip süperiletkenlere göre daha ucuz olmasıdır.

MgB_2 'nin hegzagonal kristal yapısı, Mg atomlarının oluşturduğu altıgen kapalı-paket katmanları tarafından ayrılmış olan grafit tipi B katmanlarından oluşmaktadır. Mg atomları, B atomları tarafından oluşturulmuş olan altıgenlerin merkezinde bulunur ve elektronlarını (e^-) B düzlemine verir. B düzlemleri arasındaki mesafe, B düzlemi içindeki B-B atomları arası mesafesinden belirgin bir şekilde uzundur [4-5]. Bununla birlikte MgB_2 süperiletkenin izotop etkisi ölçümlerine göre elektronlar arasındaki etkileşimin atom titreşimlerinden oluştuğu, genelde ^{11}B şeklinde bulunan bor atomlarının ^{10}B ile değiştirildiğinde kritik geçiş sıcaklığının 39 K'den 40 K'e yükseldiği ve bu kadar yüksek kritik sıcaklığa ulaşmasının diğer bir sebebi de B atomlarının düşük kütleli olmasından kaynaklandığı bildirilmiştir [6]. Ayrıca birçok araştırma grubu tarafından MgB_2 süperiletken malzemesinin; tek kristal, ince/kalın film, külçe, kablo ve şerit biçimlerinde çalışmalar yapılmıştır [7-10]. Bu bilimsel araştırmalar ışığında MgB_2 'nin gerek teknolojik uygulamalara gerekse Ar-Ge araştırmalarına oldukça yatkın bir malzeme olduğu düşünülmektedir.

Süperiletken malzeme hazırlama tekniklerinden olan ex-situ ve in-situ yöntemleri, malzemenin mikro ve makro yapısal özelliklerini, mekanik davranışlarını ve süperiletkenlik özelliklerini araştırma yönüyle oldukça sık tercih edilen yöntemlerdir [11,12]. Bu yöntemlerin yanı sıra MgB_2 malzemesine fiziksel, elektriksel ve manyetik özelliklerini iyileştirmek için yapılan katkılar [13-17], kaplamalar [18-20], birbirinin yerine geçme (yer değiştirme), Mg ya da B miktarlarındaki oran farklılığı vb. gibi çalışmalar mevcuttur [21,22]. MgB_2 süperiletkeni üzerine yapılan bu araştırmalar incelendiğinde karbon (C) ve türevleriyle (nano SiC gibi) yapılmış olan

katkılar MgB_2 'nin hem kritik akım yoğunluğu (J_c) hem de kritik geçiş sıcaklığı (T_c) arttırdığını göstermektedir [23,24].

Bu çalışmamızda sabit zamanda (1 saat) ve farklı tavlama sıcaklık aralığında (650°C, 700°C, 750°C, 800°C ve 850°C) ex-situ ve in-situ hazırlanmış MgB_2 süperiletken külçe malzemelerin bir yüzeyine yaklaşık 50 μm Au kaplaması yapılarak hem yapısal hem de elektriksel özelliklerindeki değişim incelenmiştir. Her iki yöntemle hazırlanmış olan tozların yoğunlukları, örgü parametreleri, süperiletken başlama sıcaklığı, normal durum başlama sıcaklığı ve kritik geçiş sıcaklıklarının kaplama yapılmamış MgB_2 süperiletken malzemelerle kıyasla detaylı bir şekilde karşılaştırılması yapılmıştır.

2. Deneysel çalışmalar

MgB_2 süperiletken örnekler katıhal reaksiyon yöntemi kullanılarak hazırlanmıştır. Ticari olarak satın alınan (Alfa Easer) ve %99.9 saflıkta hazır MgB_2 tozundan (ex-situ) homojen bir karışım elde etmek için agat bilyeli değirmen ile argon (Ar) gazı atmosferinde 3 saat karıştırılıp ve karıştırma işlemi her yarım saatte bir farklı dönme yönleriyle tamamlanmıştır. Bilyeli değirmendeki karıştırma işleminden hemen sonra yine Ar atmosferli glove-box'ta agat havan kullanılarak elle 1 saat daha karıştırılmıştır. Bununla birlikte in-situ MgB_2 süperiletken külçe örnek hazırlamak için $Mg+2B$ olacak şekilde uygun stokiometrik oranlarda ± 0.1 mg hassasiyetle tartılan saf Mg tozu (PVZ Magnezyum %99 saflıkta, parçacık boyutu $\approx 149-74 \mu m$), amorf bor tozu (PVZ Boron %95-97 saflıkta, parçacık boyutu $< 1 \mu m$) ve amorf nano bor tozu (PVZ Nano Boron, %98.5 saflıkta, parçacık boyutu $< 250 nm$) kullanıldı. Yarı yarıya kullanılan bor miktarları; amorf bor=3.53823g, amorf nano bor = 3.53846 g ve Mg = 8.00026 g ağırlıkta olacak şekilde belirlenmiştir [25]. Ex-situ toz hazırlama yönteminde olduğu gibi in-situ MgB_2 örnekler içinde Ar gazı altında 3 saat bilyeli değirmen ve hemen sonrası elle karıştırılmak üzere 1 saat agat havan kullanılmıştır. Homojen olarak karıştırılan toz örneklerimiz 0.4 g ağırlığında tartıldı ve 25x4x2 mm boyutlarında sertleştirilmiş çelik kalıp içerisinde 250 Bar/15dk pres uygulanarak külçe biçimine getirilmiştir. Külçe biçimine getirilmiş örneklerin bir yüzeyine $\sim 50 \mu m$ Au kaplaması EDWARDS-Auto 306 Vacuum Coating Sistemiyle 1×10^{-4} Pa vakumda gerçekleştirilmiştir. Vakumlu metal buharlaştırma cihazında Au kaplaması için Tantalyum (%99.99 saflıkta, Alfa Easer Folyo) 5x1x0.001 cm kayıkçık tercih edildi ve 15 cm uzunluğunda 0.02237 g ağırlığında ve 0.01 mm çapında Au tel kullanılmıştır.

Au kaplamalı ve kaplamasız in-situ/ex-situ MgB_2 süperiletken külçe malzemelerin ısıtma işlemleri yüksek sıcaklığa dayanıklı çekme boru içerisinde ve 5 Bar Ar gazı altında tüp fırında (Protherm-Model PTF12/75/200) yapılmıştır. Fırınlama işlemi oda sıcaklığından $5^\circ/\text{dk}$ artış ile sıcaklık artırılmış, 1 saat tavlama işlemi tamamlandıktan sonra, yine $5^\circ/\text{dk}$ sıcaklıkla düşürülmüştür.

In-situ ve ex-situ MgB_2 süperiletken örneklerin kristal yapısı ve birim hücre parametrelerini (a ve c) belirlemek amacıyla X-ışını kırınımı (XRD) yöntemi kullanılmıştır. X-ışını kırınım desenleri Rikagu bilgisayar kontrollü X-ışını difraktometresiyle CuK_α ($\lambda=1.54056 \text{ \AA}$) x-ışını kullanılarak $2\theta=10-90^\circ$ aralığında $5^\circ/\text{dk}$ sabit hızla taranarak elde edilmiştir.

Au kaplamalı ve kaplamasız MgB_2 örneklerin direnç ölçümleri için helyum gazlı CRYO Industries-Cryostat sistemi kullanılmıştır ve malzeme dörtlü kontak yöntemiyle yüksek saflıkta gümüş boyayla kontaklanmıştır. Özdirence karşı sıcaklık eğrileri $25-45 \text{ K}$ aralığında incelenmiştir. Ayrıca örneklerin kesit alanı $4 \times 2 \text{ mm}$ ve voltaj (V-V) kolları arası mesafe 15 mm sabit olacak şekilde ayarlanmıştır.

Au kaplı ex-situ MgB_2 malzemeler için zaman/sıcaklık kodlamada kullanılacak şekilde şöyle ifade edilmiştir; tozun hazırlanma yöntemi ex ya da in, kaplama yapıldıysa Au yapılmadıysa Br, tavlama zamanı 1 saat ve tavlama sıcaklığı $650^\circ\text{C}-850^\circ\text{C}$ yazıldı. Au kaplı ex-situ örneklerin kodlaması Ex-Au165, Ex-Au170, Ex-Au175, Ex-Au180 ve Ex-Au185 şeklinde, Au kaplı in-situ MgB_2 malzemelerde ise In-Au165, In-Au170, In-Au175, In-Au180 ve In-Au185 kodlaması yapılmıştır.

3. Sonuçlar ve tartışma

3.1 XRD sonuçları

In-situ ve ex-situ MgB_2 örneklerin X-ışını analizinden önce yüzeyine homojen şekilde ~ 50 mikrometrelik altın kaplamasının tayini için Al_2O_3 altlığa dört kez üst üste Au kaplaması yapıldı ve her Au kaplamasıyla X-ışını kırınım deseni incelendi. Şekil 1’de Al_2O_3 altlığına ait XRD desenleri kırmızı, aynı altlığa yapılan ilk Au kaplaması mavi, ikinci Au kaplaması yeşil, üçüncü Au kaplaması turkuaz ve dördüncü Au kaplaması ise pembe çizgiyle gösterilmiştir. Ayrıca Şekil 1’deki XRD sonuçlarına göre Al_2O_3 ’ün toplam üç tane tepe noktasına (pik) sahip ve bunlar $2\theta=14^\circ$, 21° ve 42° ’de gözlenmiştir. Birinci Au kaplamasından dördüncü kaplamaya kadar gösterilen X-ışını kırınım deseninde altına ait

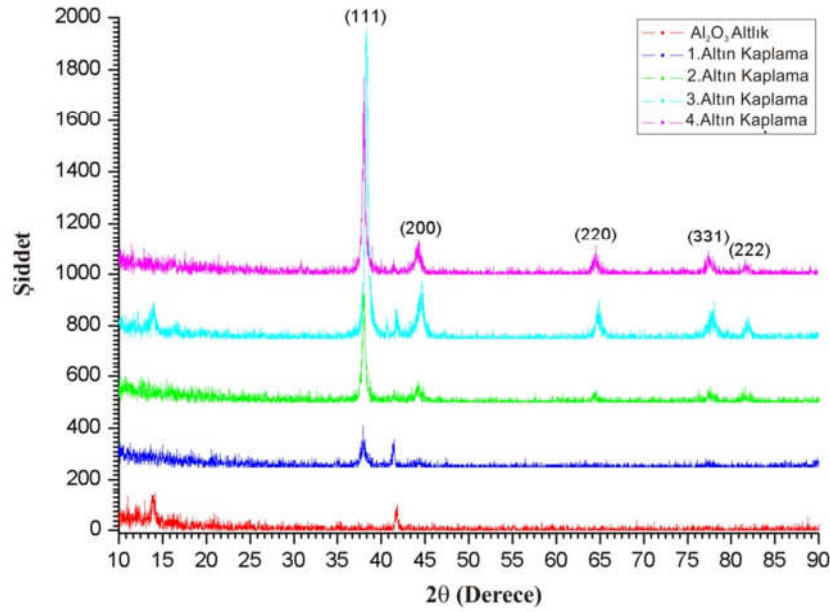
tüm düzlemler 10° ile 90° aralığında incelendi ve Au’nun ana piki $2\theta=38^\circ$ ’de olup, (111) düzleminde dir.

Ex-situ hazırlanmış MgB_2 malzemesinin hem tavlama hem de Au kaplama işleminin öncesi ve sonrasına ait XRD sonuçları: Şekil 2’de kırmızı ile tavlannmamış–Au kaplanmamış, mavi ile tavlannmamış–Au kaplanmış, yeşil ile tavlannmamış–Au kaplanmış ve turkuaz ile tavlannmamış–Au kaplanmış örnekler için gösterilmiştir.

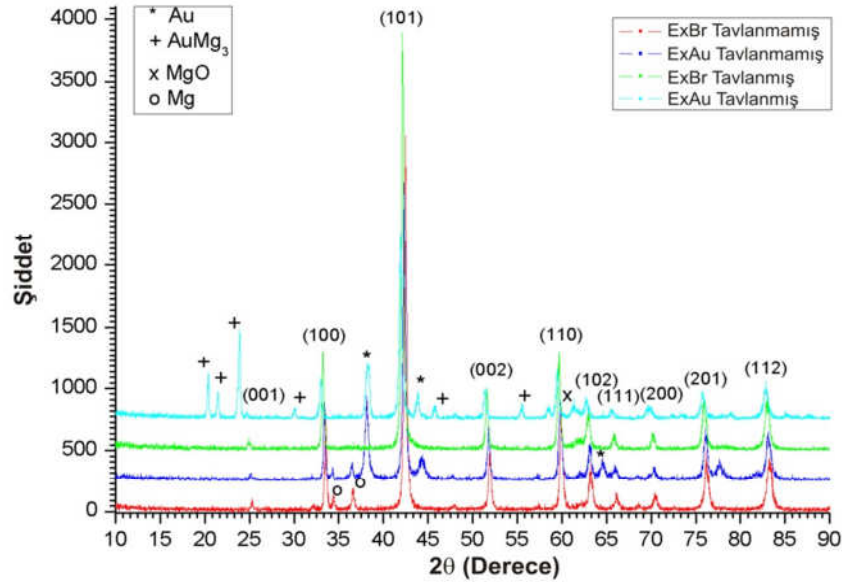
Ex-situ MgB_2 süperiletkeni fırın öncesinde de bu örneğe ait olan $2\theta=42^\circ$ ana fazı ve (101) düzlemi vardır. Fakat fırın öncesi ex-situ MgB_2 örneğimizde etkileşime girmemiş Mg atomları görülmektedir, Mg atomuna ait pikler halka “o” ile gösterilmiştir. Fırınlanmamış ve Au kaplanmış ex-situ MgB_2 süperiletken örneğine ait X-ışını kırınım desenine göre etkileşime girmemiş Mg atomlarının yanı sıra Au’ya ait tüm piklerde gözlemlenmiştir.

Şekil 1’de altlığın üzerine kaplanan Au ile Şekil 2’de MgB_2 ’ye kaplanan Au pikleri birbiri üzerine oturmakta ve böylece örnek üzerine homojen bir Au kaplaması yapıldığı belirlenmiştir. Ayrıca Au kaplaması yapılmamış fakat tavlannmamış örneklerimizde yukarıda da bahsettiğimiz serbest Mg atomları gözlenmemiştir. Bunun yanında hem tavlannmamış hem de Au kaplanmış ex-situ MgB_2 süperiletken örneğinin XRD analizleri sonucu; Au atomuna ait $2\theta=38^\circ$ piki gözlenmiş olup, hepsinden önemlisi Au ile Mg atomları metal alaşım oluşturduğu ve $AuMg_3$ alaşımına ait pikleri gözlenmektedir [26].

Şekil 2’den görüleceği üzere $AuMg_3$ pikleri artı “+” ve MgB_2 süperiletkenine ait düzlemlerde parantez içerisinde rakamlarla gösterilmiştir. Ex-situ MgB_2 süperiletken malzemenin XRD analizlerinde yapılan işlemlerin tamamı in-situ MgB_2 örnekler içinde tekrarlanmış ve Şekil 3’de tavlama ve Au kaplama öncesi/sonrasına ait xrd kırınım desenleri aynı renklerle kullanılarak gösterilmiştir. Şekil 3’e göre Au kaplamasız ve tavlannmamış in-situ MgB_2 örneklerde sadece Mg ve B atomlarına ait pikler gözlenirken, MgB_2 ’ye ait herhangi bir pik gözlemlenmemiştir. Ayrıca Au kaplanmış ama tavlannmamış in-situ MgB_2 için Şekil 1’de altlığa yapılan Au kaplamasında olduğu gibi altına ait pikler birbiri üstüne oturmaktadır. Böylece hem ex-situ hem de in-situ MgB_2 ’ye Au kaplaması istenildiği gibi başarılmıştır.



Şekil 1. Al_2O_3 altlığına ve altın kaplamasına ait X-ışını kırınım desenleri.



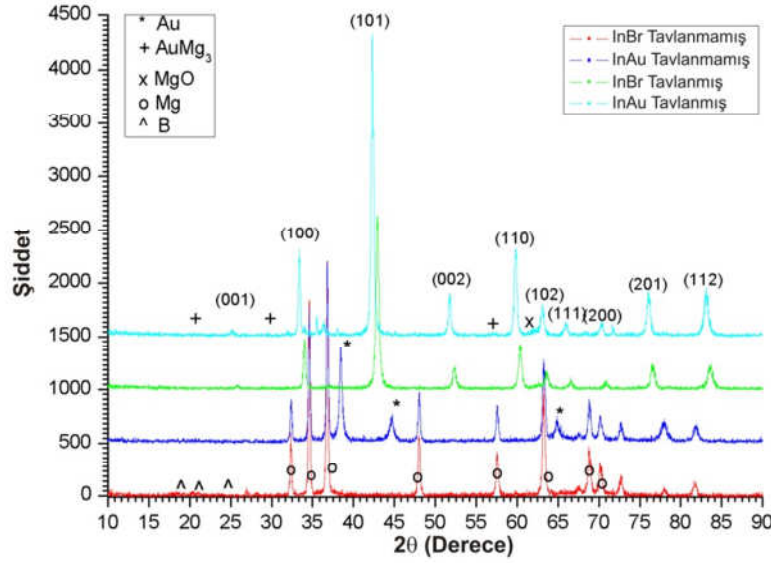
Şekil 2. Ex-situ örnekler için Au kaplaması ve tavlama öncesi/sonrasına ait X-ışını kırınım desenleri.

Tavlama işlemiyle in-situ MgB_2 malzemesi süperiletkenlik fazı kazanmış ve serbest Mg miktarlarında ciddi azalış gözlenmiştir, bunun yanı sıra ex-situ MgB_2 örneklerinde olduğu gibi hem tavlama ile hem de Au kaplamasıyla birlikte Au atomuna ait $2\theta=38^\circ$ piki vardır. Ayrıca Mg atomlarıyla Au, in-situ örneğimizde de metal-metal alaşım oluşturmuştur. Hem Şekil 2’de hem de Şekil 3’de fırınlama işlemi öncesi ve sonrası Au kaplı örneklerin XRD desenlerine dikkat edilirse MgB_2 ’ye ait ana fazın kaydığı görülebilmektedir.

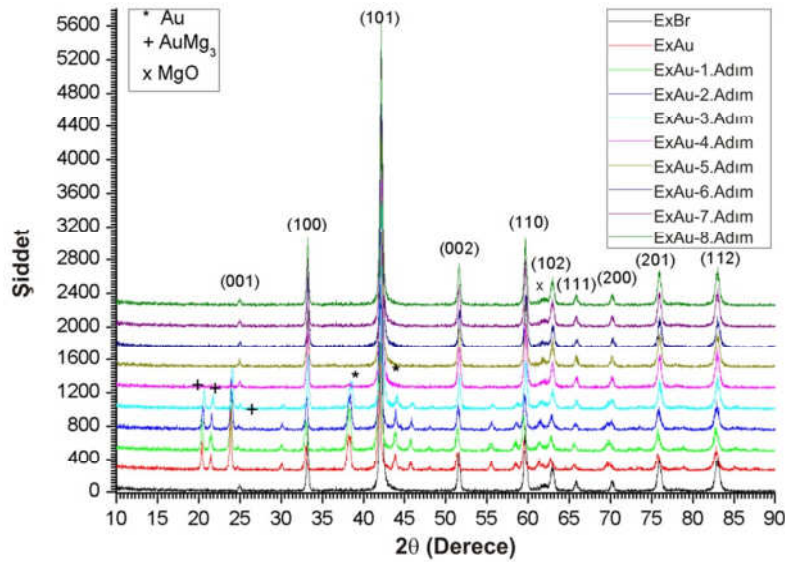
Şekil 4’de Au kaplamasının ex-situ MgB_2 süperiletkeni için kaplanan yüzeyden her adımda ~25 mikronluk yüzey kaldırılarak toplamda sekiz adımda 200 mikronluk kısım kaldırılmış ve Au

atomlarının etkisi X-ışını kırınım desenleriyle gösterilmiştir.

Şekil 4’deki XRD desenleri sonucuna göre ~50 μm Au kaplaması süperiletken MgB_2 malzemesinin 150 μm kadar derine nüfus etmekte ve kaplamasız örneklere kıyasla yedinci ve sekizinci adımlarda aynı örgü parametre değerine sahip olmaktadır. Ayrıca Au kaplamasıyla XRD desenlerinde özellikle ana faz olan (101) düzlemine ait $2\theta=42^\circ$ ’de kayma gözlemlenmiştir. Ayrıca 100 μm yüzey kaldırmadan sonra X-ışını kırınım desenlerinde Au ile Mg arasındaki oluşan AuMg_3 alaşımı tümüyle ortadan kalkmış ve altıncı adımdan sonra kaplamasız örneğe ait XRD desenleri birbiri üzerine tamamen örtüşmektedir.



Şekil 3. In-situ örnekler için Au kaplaması ve tavlama öncesi/sonrasına ait X-ışını kırım desenleri.



Şekil 4. Au kaplı ex-situ MgB_2 süperiletkenin derinlikle değişen X-ışını kırım desenleri.

Sabit zamanda (1 saat) ve farklı sıcaklıklarda tavlanan ex-situ ve in-situ MgB_2 süperiletken malzemelerin örgü parametreleri (a ve c) hesaplanmış ve Tablo 1'de gösterilmiştir. Ayrıca Tablo 1'de süperiletken örneklerin hangi sıcaklıklarda tavlандığı ve özkütle hesaplamaları verilmiştir. Tablo 1'den anlaşılacağı üzere kaplamasız ex-situ MgB_2 süperiletken malzemeye göre Au kaplı ex-situ örneklerde a ve c örgü parametresi her tavlama sıcaklığı için artış göstermiştir ve Au atomlarının süperiletken yapıya girdiği ispatlanmıştır. Ayrıca tavlama sıcaklığı artışıyla Au kaplı MgB_2 örneklerin c örgü parametresi de azalmıştır. Sıcaklık artışıyla Au kaplı malzemelerin c örgü parametresindeki azalış, MgB_2 süperiletkenin yüksek sıcaklıkta örgü parametreleri açısından daha optimize olduğu sonucu çıkartılabilir [27].

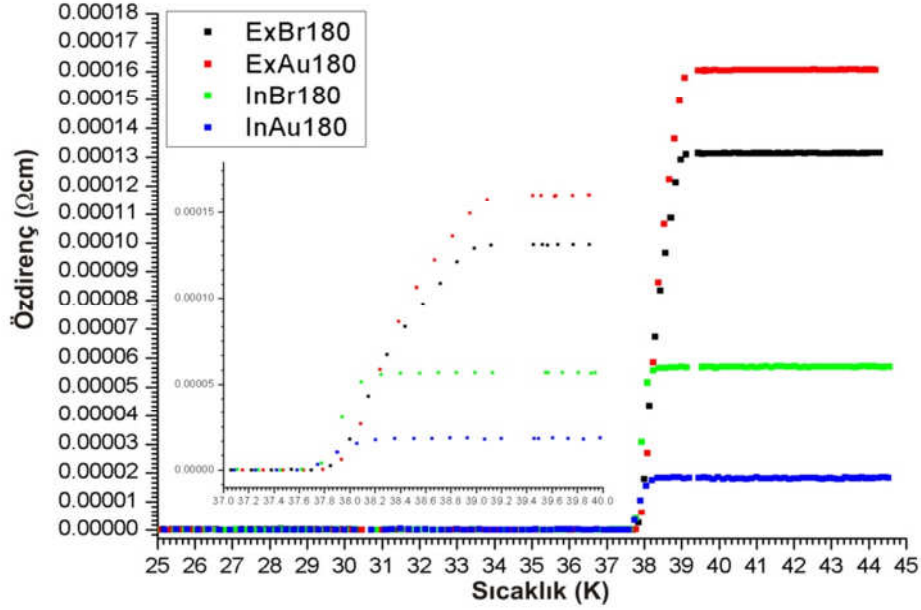
Her iki örnek grubunda da sıcaklık artışı ve kaplama ile birlikte özkütlelerinde ~ 15 civarı artış vardır. Tavlama sıcaklığı artışı malzemelerin boşluklu yapısında iyileşmeye sebep olduğu özkütle hesaplarıyla vurgulanmıştır. Bunun sonucu olarak Au kaplaması süperiletken malzemeden kaçan Mg atom/ionlarını da engellemiştir. Kaplama yapılmamış örneklere kıyasla, MgB_2 süperiletken malzemenin sıcaklıkla ve kaplamayla kütle artışı gösterdiği bulunmuştur.

3.2 Elektriksel ölçümler

Sabit zamanda ve farklı sıcaklıklarda tavlanan ex-situ ve in-situ MgB_2 külçe süperiletken malzemelerin kritik geçiş sıcaklıkları R-T eğrilerinden faydalanarak ve türev hesabı kullanılarak belirlenmiş ve 1 saat $800^\circ C$ 'de tavlanan her iki örnek için özdirence karşı sıcaklık eğrisi Şekil 5'de gösterilmiştir.

Farklı tavlama sıcaklık değerlerindeki kritik geçiş sıcaklığı T_c , süperiletkenliğin başladığı sıcaklık (T_c^{zero}), normal durumun başladığı sıcaklık (T_c^{onset}) ve karışık durum sıcaklığı (ΔT) Tablo 2’de gösterilmiştir. Her iki yöntemle hazırlanan süperiletken örnekler $\sim 50 \mu m$ Au kaplaması malzemenin kritik geçiş sıcaklığına fazlaca etki göstermemiştir. Au kaplamasız ex-situ MgB_2 süperiletken külçe örneklerde en yüksek T_c ’ye 37.94 K değeriyle ExBr180 yani 1 saat 800°C’de tavlanan malzeme sahipken MgB_2 süperiletken külçe

örneklerde ise 38.54 K değeriyle InBr185 yani 1 saat 850°C’de tavlanan malzeme sahiptir. Böylelikle hem ex-situ hem de in-situ malzemeler yüksek sıcaklıklarda (ex-situ için 1 saat 800°C ve in-situ için 1 saat 850°C) en iyi kritik geçiş sıcaklığına ulaştığı hesaplanmıştır. En yüksek kritik geçiş sıcaklığına sahip örnekler aynı zamanda en düşük ΔT değeri göstermiştir. Örnek olarak ExBr180 malzemesinde $\Delta T = 1.78$ K’iken InBr185 malzemesinde $\Delta T = 0.84$ K’dir.



Şekil 5. 1 saat 800°C’de tavllanmış ex-situ ve in-situ MgB_2 süperiletken külçe örneklerin özdirence karşı sıcaklık eğrileri.

Tablo 1. In-situ ve ex-situ MgB_2 süperiletken malzemesine ait örgü parametresi ve özkütle değerleri.

MgB ₂ Örnekler	Tavlama Sıcaklıkları	a örgü parametresi ±0.001(Å)	c örgü parametresi ±0.001(Å)	Özkütle ±0.001(g/cm ³)
ExBr165	650°C	3.089	3.524	1.810
ExAu165		3.125	3.552	2.082
InBr165		3.109	3.519	1.052
InAu165		3.099	3.523	1.112
ExBr170	700°C	3.082	3.521	1.816
ExAu170		3.125	3.543	2.084
InBr170		3.112	3.528	1.063
InAu170		3.092	3.537	1.126
ExBr175	750°C	3.081	3.521	1.846
ExAu175		3.124	3.542	2.123
InBr175		3.109	3.528	1.071
InAu175		3.099	3.529	1.226
ExBr180	800°C	3.080	3.529	1.898
ExAu180		3.115	3.539	2.183
InBr180		3.109	3.540	1.111
InAu180		3.088	3.541	1.287
ExBr185	850°C	3.089	3.529	1.910
ExAu185		3.119	3.532	2.196
InBr185		3.111	3.543	1.189
InAu185		3.091	3.549	1.335

Tablo 2. In-situ ve ex-situ MgB₂ süperiletken külçe malzemelerin T_c , T_c^{offset} , T_c^{onset} ve ΔT değerleri.

MgB ₂ Örnekler	T_c^{offset} (K)	T_c (K)	T_c^{onset} (K)	ΔT (K)
ExBr165	37.02	37.93	39.01	1.99
ExAu165	37.57	38.20	39.55	1.98
InBr165	37.45	38.07	38.51	1.06
InAu165	38.26	38.41	38.86	0.60
ExBr170	36.57	37.17	39.09	2.92
ExAu170	37.48	37.95	39.54	2.06
InBr170	37.78	38.11	38.84	1.06
InAu170	37.23	37.69	38.28	1.05
ExBr175	37.09	37.82	38.89	1.80
ExAu175	37.26	37.92	38.95	1.69
InBr175	37.80	38.11	38.66	0.86
InAu175	37.68	38.16	38.75	1.07
ExBr180	37.30	37.94	39.11	1.78
ExAu180	37.46	38.08	39.44	1.98
InBr180	37.27	37.77	38.24	0.97
InAu180	37.41	37.74	38.50	1.09
ExBr185	35.96	37.02	38.78	2.82
ExAu185	37.73	38.21	39.53	1.80
InBr185	38.10	38.54	38.94	0.84
InAu185	38.01	38.32	39.04	1.03

Ayrıca Şekil 5’de görüleceği üzere 1 saat 800°C’de tavlanan Au kaplamalı örneklerin normal durum dirençleri ex-situ hazırlanmış tüm örneklerde artış gösterirken, in-situ hazırlanmış tüm örneklerde azalış eğilimindedir. Bu sonuç ex-situ örneklerle göre in-situ örneklerdeki boşlukların Au atomlarıyla dolduğunu, yani Au kaplamanın daha derine nüfus ettiğinin göstergesi olabilir.

Sonuç olarak ex-situ ve in-situ yöntemleriyle hazırlanmış MgB₂ süperiletken külçe örnekler Au kaplaması hem c örgü parametresinin hem de özkütlenin artmasına neden olmuştur. Ex-situ MgB₂ malzemeye Au kaplaması, malzemenin 150 μ m’lik kısma etki ettiği XRD desenleriyle ispat edilmiştir. Kaplanan Au atomları süperiletken malzemede serbest Mg atomlarıyla AuMg₃ metal-metal alaşımı oluşturmuş ve bu alaşımın malzemenin ~100 μ m kadar kalınlıkta etkisi gösterilmiştir. Ayrıca

kaplamasız örneklerle kıyasla tüm tavlama sıcaklıklarında Au kaplanmış ex-situ malzemelerin T_c değerlerinde küçük iyileşmeler varken in-situ örnekler için böyle bir durum söz konusu değildir. Malzemelerin RT analiz sonucuna göre in-situ örneklerin normal durum dirençleri kaplama ile birlikte 1/3 oranında azalma göstermiştir. Bununla birlikte süperiletkenliğin başladığı ve son bulduğu sıcaklık aralığı ($\Delta T = 0.60$ K) en az olan InAu165 malzemesi, Au kaplı en yüksek kritik geçiş sıcaklığına (38.41 K) sahiptir.

Teşekkürler

Bu çalışmaya katkı sağlayan doktora danışmanım Sayın Prof. Dr. İbrahim BELENLİ’ye ve maddi destek sağlayan 117F263 Numaralı TÜBİTAK Projesine teşekkür ederim.

Kaynaklar

- [1] Onnes, H.K., Disappearance of the electrical resistance of mercury of helium temperature, **Akad. Van Wetenschappen**, 14, 113, (1911).
- [2] Jones, M.E. and Marsh R.E., The preparation and structure of magnesium boride, MgB₂, **Journal of the American Chemical Society**, 76, 5, 1434, (1954).
- [3] Nagamatsu, J., Nakagawa, N., Muranaka, T., Zenitani, Y. and Akimitsu, J., Superconductivity at 39 K in magnesium diboride, **Nature**, 410, 6824, 63-64, (2001).
- [4] Kortus, J., Mazin, I.I., Belashchenko, K.D., Antropov, V.P. and Boyer, L.L., Superconductivity of metallic boron in MgB₂, **Physical Review Letters**, 86, 20, (2001).
- [5] Vinod, K., Neson V. and Syamaprasad U., Superconductivity of MgB₂ in the BCS framework with emphasis on extrinsic effects on critical temperature, **Superconductor Science and Technology**, 20, 10, (2007).
- [6] Bud’Ko, S.L., Lapertot, G., Petrovic, C., Cunningham, C. E., Anderson, N. and Canfield, P.C., Boron isotope effect in superconducting MgB₂, **Physical Review Letters**, 86, 9, (2001).
- [7] Onar, K., Balci, Y. and Yakinci, M.E., Effect of grain size on the electrical and magnetic properties of MgB₂ thick films deposited on the Al₂O₃ single crystal substrates, **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, 25, 5, 2104-2110, (2014).
- [8] Hossain, M.S.A., Motaman, A., Çiçek, Ö., Ağıl, H., Ertekin, E., Gencer, A. and Dou, S.X., The effects of annealing temperature on the in-field J_c and surface pinning in silicone oil doped MgB₂ bulks and wires. **Cryogenics**, 52, 12, 755-759, (2012).

- [9] Akdoğan, M., Yetiş, H., Gajda, D., Karaboğa, F., Ülgen, A.T., Demirtürk, E. and Belenli, İ., Effect of the initial filling density on the critical current of in-situ Fe/MgB₂ wires, **Journal of Alloys and Compounds**, 649, 1007-1010, (2015).
- [10] Susner, M.A., Yang, Y., Sumption, M.D., Collings, E.W., Rindfleisch, M.A., Tomsic, M.J. and Marzik, J. V., Enhanced critical fields and superconducting properties of pre-doped B powder-type MgB₂ strands. **Superconductor Science and Technology**, 24, 1, 012001, (2010).
- [11] Yakinci, M. E., Aydogdu, Y., Aksan, M. A., Balci, Y. and Altin, S., Effects of in-situ and ex-situ heat-treatment procedures on the transport properties of the MgB₂ superconducting thin films fabricated by ultrasonic spray pyrolysis (USP) system, **Journal of Superconductivity and Novel Magnetism**, 24, 1, 241-245, (2011).
- [12] Senol, M.A. and Karaboga, F., Microstructure and transport properties of compaction-modified in situ Fe/MgB₂ wires. **Journal of Superconductivity and Novel Magnetism**, 29, 10, 2479-2485, (2016).
- [13] Yanmaz, E., Castillo-Berrio, C., Alkan, Ü., Ülgen, A.T., Karaboğa, F., Enis, O. and Saraçoğlu, İ., Bulk Mg_xB₂ superconductor production by excess Mg and hot press methods and their properties, **Bor Dergisi**, 43-48, (2017).
- [14] Koparan, E.T., Savaskan, B., Guner, S.B. and Celik, S., Effects of Bi-2212 addition on the levitation force properties of bulk MgB₂ superconductors. **Applied Physics A**, 122, 2, 46, (2016).
- [15] Dogruer, M., Yildirim, G., Yucel, E. and Terzioğlu, C., Role of diffusion-annealing temperature on the microstructural and superconducting properties of Cu-doped MgB₂ superconductors, **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, 23, 11, 1965-1970, (2012).
- [16] Babaoğlu, M.G., Safran, S., Çiçek, Ö., Ağıl, H., Ertekin, E., Hossain, M.S.A. and Gencer, A., Microstructural and superconducting properties of C₆H₆ added bulk MgB₂ superconductor, **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, 324, 21, 3455-3459, (2012).
- [17] Mamedov, B.A. and Askerov, I.M., A new algorithm for accurate evaluation of the generalized Bloch–Gruneisen function and its applications to MgB₂ superconductor. **Physics Letters A**, 362, 4, 324-326, (2007).
- [18] Ülgen, A.T. and Belenli, İ., The effect of Fe diffusion on some physical and superconducting properties of MgB₂, **Journal of Superconductivity and Novel Magnetism**, 30, 4, 1089-1095, (2017).
- [19] Dogruer, M., Yildirim, G. and Terzioğlu, C., Effect of diffusion-annealing time on magnetoresistivity of Cu-diffused bulk MgB₂ superconductors with experimental and theoretical approaches, **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, 24, 3, 958-967, (2013).
- [20] Ülgen, A.T. and Belenli, İ., Sintering time dependence of iron diffusion in MgB₂ and its effect on superconducting properties, **AIP Conference Proceedings**, 1815, 1, 040008, (2017).
- [21] Aldica, G., Burdusel, M., Popa, S., Hayasaka, Y. and Badica, P., Graphene addition to MgB₂ superconductor obtained by ex-situ spark plasma sintering technique, **Materials Research Bulletin**, 77, 205-211, (2016).
- [22] Gajda, D., Morawski, A., Zaleski, A., Yamamoto, A. and Cetner, T., A defect detection method for MgB₂ superconducting and iron-based Ba (Fe, Co)₂As₂ wires, **Applied Physics Letters**, 108, 15, 152601, (2016).
- [23] Peng, J., Liu, Y., Ma, Z., Al Hossain, M. S., Xin, Y. and Jin, J., Superior critical current density obtained in MgB₂ bulks via employing carbon-coated boron and minor Cu addition, **Physica C: Superconductivity and its Applications**, 528, 60-64, (2016).
- [24] Barua, S., Al Hossain, M.S., Ma, Z., Patel, D., Mustapic, M., Somer, M. and Gajda, D., Superior critical current density obtained in MgB₂ bulks through low-cost carbon-encapsulated boron powder, **Scripta Materialia**, 104, 37-40, (2015).
- [25] Akdoğan, M., Yetiş, H., Gajda, D., Karaboğa, F., Rogacki, K., Morawski, A. and Belenli, İ., Use of amorphous boron and amorphous nano boron powder mixture in fabrication of long in-situ MgB₂/Fe wires, **Journal of Alloys and Compounds**, 702, 399-403, (2017).
- [26] Range, K. J. and Hafner, P., Structure refinement of AuMg₃, IrMg₃ and IrMg_{2.8}, **Journal of Alloys and Compounds**, 191, 2, L5-L7, (1993).
- [27] Zalaoglu, Y., Karaboga, F., Terzioğlu, C. and Yildirim, G., Improvement of mechanical performances and characteristics of bulk Bi-2212 materials exposed to Au diffusion and stabilization of durable tetragonal phase by Au, **Ceramics International**, 43, 9, 6836-6844, (2017).